

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

DIALOG(R) File 351:Derwent WPI
(c) 2001 Derwent Info Ltd. All rts. reserv.

000803478

WPI Acc No: 1971-45163S/197127

Plastic frame for fuel cell batteries

Patent Assignee: SIEMENS AG (SIEI)

Number of Countries: 003 Number of Patents: 003

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applicat No	Kind	Date	Week
DE 1964811	A					197127 B
FR 2072057	A					197151
GB 1341027	A					197351

Priority Applications (No Type Date): DE 1964811 A 19691224

Abstract (Basic): DE 1964811 A

Plastic frames pref. of polysulphone or epoxy resin to which positive or negative electrodes are cemented contain in their rim all necessary ports and channels for the introduction of H₂, O₂ and electrolyte. Several frames containing bilateral positive and negative electrodes are cemented to a stack forming a battery.

Title Terms: PLASTIC; FRAME; FUEL; CELL; BATTERY

Derwent Class: A21; A26; A81; A85; L03; X16

International Patent Class (Additional): H01M-027/02

File Segment: CPI; EPI

⑤1

Int. Cl.:

H 01 m, 27/02

BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

DEUTSCHES PATENTAMT



⑤2

Deutsche Kl.:

21 k9, 27/02

⑩

⑪

⑫

⑬

⑭

Offenlegungsschrift 1964 811

Aktenzeichen: P 19 64 811.4

Anmeldetag: 24. Dezember 1969

Offenlegungstag: 1. Juli 1971

Ausstellungspriorität: —

⑮

Unionspriorität

⑯

Datum: —

⑰

Land: —

⑱

Aktenzeichen: —

⑤4

Bezeichnung:

Brennstoffzellenbatterie

⑥1

Zusatz zu: —

⑥2

Ausscheidung aus: —

⑦1

Anmelder:

Siemens AG, Berlin und München, 8000 München

Vertreter: —

⑦2

Als Erfinder benannt.

Denk, Hans, Dr., 8035 Gauting; Habrich, Reiner, 8000 München;
Straßer, Karl, Dipl.-Ing., 8520 Erlangen

Benachrichtigung gemäß Art. 7 § 1 Abs. 2 Nr. 1 d. Ges. v. 4. 9. 1967 (BGBl. I S. 960): —

DT 1964811

SIEMENS AKTIENGESellschaft
Berlin und München

1964811
23. Dez. 1969
Erlangen, den
Werner-von-Siemens-Str. 50

Unser Zeichen:
VPA 69/1038 By/Kö

Brennstoffzellenbatterie

Gegenstand der Erfindung ist eine Brennstoffzellenbatterie mit porösen Elektroden sowie Verfahren zu ihrer Herstellung.

Aus dem Schweizer Patent 456 704 ist es bereits bekannt, benachbarte Einzelteile eines Brennstoffelementes mit porösen Elektroden miteinander zu verkleben oder zu verschweißen und die so gebildeten Modulelemente beim Aufbau einer Brennstoffzellenbatterie aneinanderzureihen. Dabei werden die Randzonen der Gasdiffusionselektroden zunächst durch Pressen zu einem gas- und flüssigkeitsdichten Rahmen verdichtet und anschließend für den Aufbau des Modulelementes mit einem aushärtbaren flüssigen Elastomeren beschichtet. In gleicher Weise werden die Randzonen der Elektrolytträger, z.B. Asbestschichten, mit Elastomerschichten versehen. Nach erfolgter Aushärtung des Elastomeren werden dann die Randzonen der Einzelteile mit Lochungen für die Zu- bzw. Abführung der Reaktanten sowie einer Reihe weiterer Elastomerschichten versehen. Schließlich werden die Einzelteile nach Aufbringen und Antrocknen der letzten Elastomerschicht aufeinandergelegt und bis zum Aushärten des Elastomeren miteinander verpreßt. Zum Schluß wird auf die Randzonen des so hergestellten Modulelementes eine zusätzliche Elastomerschicht aufgebracht, die nach der Montage der Batterie gegen die entsprechenden Schichten des anschließenden Modulelementes, z.B. die Elastomerschichten einer Wasserentzugszelle oder eines Gasraummodulelementes, gepreßt wird, um auf diese Weise eine gegenseitige Abdichtung der Modulelemente herbeizuführen.

Es hat sich jedoch gezeigt, daß Batterien dieser Bauart technisch noch nicht befriedigend sind. Darüber hinaus ist das Herstellungsverfahren der Modulelemente umständlich und zeitraubend.

BAD ORIGINAL

109827/0743

Gemäß einem anderen Vorschlag können poröse Elektroden mit dazwischen liegenden Dichtungsrahmen auch derart zu einem Batterieverband vereinigt werden, daß der gestapelte Batterieblock mit einem Mantel aus Vergußmasse versehen wird, welcher die außerhalb des Rahmens liegenden Randbereiche der Elektroden umschließt. Auf diese Weise werden die einzelnen Betriebsräume gegeneinander abgedichtet. Die Zuführung bzw. Abführung der Betriebsmittel erfolgt hierbei über Kanäle in der Vergußmasse und den Dichtungsrahmen, die nach der Aushärtung des Gießharzes entweder durch Anbohren der Vergußmasse und der Dichtungsrahmen oder durch Herauslösen der hierfür eingesetzten Dichtungsmaterialien gebildet werden.

Ziel der vorliegenden Erfindung ist es nun, eine Brennstoffzellenbatterie mit porösen Elektroden zu finden, welche die vorerwähnten Nachteile nicht mehr aufweist. Insbesondere soll die Brennstoffzellenbatterie keine lösbaren Dichtungsstellen mehr enthalten, leicht herstellbar sein und die bei der Kanalbildung durch Anbohren bzw. Herauslösen der Dichtungsmaterialien auftretenden Schwierigkeiten nicht mehr aufweisen.

Die Lösung der gestellten Aufgabe wird dadurch erreicht, daß die Elektroden mit einem Profilrahmen, der mit Öffnungen für die Zu- und Abführung der Betriebsmittel versehen ist, gas- und flüssigkeitsdicht verklebt sind, und daß die Profilrahmen der in alternierender Reihenfolge aufgestapelten negativen und positiven Elektroden untereinander ebenfalls gas- und flüssigkeitsdicht verklebt sind.

Als Elektroden werden erfindungsgemäß doppelseitig arbeitende Elektroden eingesetzt. Derartige Elektroden werden bekanntlich auch als Janus-Elektroden bezeichnet und bestehen aus einer Gasleitschicht mit beidseitig davon angeordneten grobporigen Deckschichten.

Der Profilrahmen nach der Erfindung besteht aus einem elektrisch nichtleitenden Material, insbesondere aus einem thermoplastischen oder duroplastischen Kunststoff wie Polysulfon oder Epoxidharz, kann jedoch auch aus einer keramischen Masse bestehen, was

109827/0743

BAD ORIGINAL

besonders für Hochtemperatur-Brennstoffzellenbatterien von Bedeutung ist.

Das Verkleben der Elektroden mit dem Profilrahmen sowie der Profilrahmen miteinander kann auf verschiedene Weise erfolgen und richtet sich jeweils nach dem Elektrodenmaterial, eingesetzten Elektrolyten und der chemischen Zusammensetzung des Profilrahmens. So kann der Kunststoffrahmen mit einem geeigneten Lösungsmittel angelöst und die Elektrode auf den angelösten Rahmenteil aufgepreßt werden. Auch kann die Elektrode mittels eines Klebers auf den Profilrahmen geklebt werden, wobei der Kleber aus dem gleichen Material wie der Rahmen oder aus einem anderen Material besteht. Es wurden Elektroden sowohl mit Polysulfonlösungen (Lösungsmittel Dichlormethan) als auch mit Epoxidharzen und Epoxidharzlösungen in Profilrahmen aus Polysulfon eingeklebt. Zum Einkleben der Elektroden in die Profilrahmen und zum Verkleben der Profilrahmen untereinander können jedoch auch Klebfilme, beiseitig klebende Folien oder Prepregs verwendet werden, wobei unter Prepregs mit Epoxidharz oder anderen Kunststoffen vorimprägnierte Glasgewebe, Asbestpapiere oder Kohlefilze verstanden werden.

Erfolgt die Verklebung der Elektroden mit dem Profilrahmen oder der Profilrahmen miteinander über Prepregs, so hat es sich als vorteilhaft erwiesen, wenn die zu verklebenden Elektrodenränder vor dem Auflegen der Prepregs mit Kunststoffen versiegelt werden. Die Versiegelung kann dabei wie das Aufbringen des Klebers auf die Elektroden oder Profilrahmen im Siebdruckverfahren geschehen, wobei zu beachten ist, daß die Siebdruckmasse nur in die Deckschichten der Janus-Elektroden eindringt. Als Siebdruckmasse werden bevorzugt reaktive Harzsysteme auf Bisphenol-A-Basis eingesetzt, die mit aromatischen, aliphatischen und/oder tertiären Aminen sowie Titandioxid und Ruß versehen sind und bei RT oder erhöhten Temperaturen aushärten. Gegebenenfalls können diese Harzsysteme auch in Mischung mit Lösungsmitteln wie Halogenkohlenwasserstoffen, Ketonen und Estern eingesetzt werden.

Die eben erwähnten Harzsysteme können auch als alleiniger Kleber, als Beschichtungsmaterial für Prepregs und als Klebefilme im

109827/0743

BAD ORIGINAL

B-Zustand verwendet werden und sind gegenüber den Elektrolyten außerordentlich beständig.

Die Profilrahmen bestehen vorzugsweise aus einem Polysulfon oder einem Epoxidharz. Aus der Gruppe der Epoxidharze haben sich besonders solche auf Bisphenol-A-Basis bewährt, die mit aromatischen und/oder aliphatischen und/oder tertiären Aminen oder metallorganischen Verbindungen, beispielsweise Aluminiumtrialkyl gehärtet worden sind. Die Profilrahmen können durch Spritzen, Gießen oder Pressen hergestellt werden und enthalten die für die Zu- bzw. Abführung der Betriebsmittel benötigten Öffnungen und Aussparungen, so daß die bisherige nachträgliche Bildung der Kanäle entfällt. Ein langwieriges Auswaschen von Dichtungsmitteln oder Anbohren der Vergußmassen ist also nicht mehr erforderlich, was gegenüber dem Stand der Technik einen erheblichen Fortschritt darstellt. Verstopfungen der Kanäle und Verunreinigungen der Elektroden werden auf diese Weise mit Sicherheit ausgeschlossen. Durch die Verwendung von Profilrahmen und Verkleben der Profilrahmen miteinander und den Elektroden wird ferner erreicht, daß Abstandshalter und Dichtungsrahmen nicht mehr benötigt werden und daß das Eingießen des Batterieblocks in Kunststoffe wegfällt. Dadurch entfallen auch die in Vergußmassen infolge von Reaktionsschwund und thermischen Schwund auftretenden Schwierigkeiten, so daß die Betriebssicherheit der Batterie beträchtlich erhöht wird.

Ein weiterer Vorteil der Erfindung wird darin gesehen, daß nunmehr die Brennstoffzellenbatterie auch serienmäßig angefertigt werden kann. Es wird nämlich nur noch eine Art von Rahmen benötigt. Die zur Bildung der Elektrolyträume ansonsten benötigten Dichtungsrahmen sind überflüssig. Die Elektrolyträume werden in einfacher Weise durch Aufeinanderstapelung der die Janus-Elektroden enthaltenden Profilrahmen gebildet, wobei die Verklebungen die Dichtungsrahmen ersetzen und eine gewisse Elastizität gewährleisten. An dieser Stelle ist weiterhin erwähnenswert, daß das Einkleben der Elektroden in die Profilrahmen und das Verkleben der Profilrahmen auch in einem einzigen Arbeitsgang erfolgen kann.

Anhand der nachstehenden Figuren soll nun der Gegenstand der

109827/0743

BAD ORIGINAL

Erfindung noch näher erläutert werden.

Fig. 1 zeigt zunächst einen Profilrahmen aus Polysulfon im Grundriß, in welchen die negative oder positive Janus-Elektrode eingeklebt wird. Mit 1 und 2 sind darin die Öffnungen mit den entsprechenden Aussparungen für die Zu- und Abführung des Wasserstoffes bzw. Sauerstoffes und mit 3 und 4 die Öffnungen für die Längskanäle zur Führung des Wasserstoffs bzw. Sauerstoffs bezeichnet. Die Elektrolytführung erfolgt über die Öffnungen 5 und 6. Die Spannschrauben werden bei der Montage der Batterie durch die Öffnungen 7, 8, 9 und 10 geführt. Auf dem Rahmensteg 13 wird gemäß der Erfindung die positive oder negative Janus-Elektrode aufgeklebt. Die Abnahme der Spannung erfolgt über die Kontaktfahne 14, die in die Elektrode eingepreßt oder eingeschweißt ist. Mit 11 und 12 sind Öffnungen bezeichnet, die bei der Montage der Batterie die gegebenenfalls gewünschten Kanäle zur Rückführung des Elektrolyten ergeben. Mit Hilfe dieser Kanäle lassen sich die Verlustströme auf einfache Weise herabsetzen.

Werden nun in Profilrahmen nach Fig. 1 eingeklebte positive und negative Janus-Elektroden in abwechselnder Reihenfolge derart aufeinandergelegt, daß sich die Öffnungen 1 und 2 der positiven Elektroden und die Öffnungen 1 und 2 der negativen Elektroden an gegenüberliegenden Seiten befinden und miteinander erfindungsgemäß verbunden, so bilden sich innerhalb der Batterie Längskanäle aus, über welche die Betriebsmittel den Elektroden bzw. Elektrolyträumen zugeleitet werden können.

Fig. 2 zeigt eine Batterie nach der Erfindung im Querschnitt. Sie setzt sich zusammen aus den beiden positiven Janus-Elektroden 15 und den beiden negativen Janus-Elektroden 16. Die Profilrahmen 17 bestehen aus Polysulfon und sind über die Prepregs 18 miteinander verklebt. Die Endplatten sind in der Figur mit 19 bezeichnet. Zwischen den Janus-Elektroden befindet sich jeweils der Elektrolytraum 20.

In der in Fig. 2 gezeigten Ausführungsform der Erfindung werden aus fertigungstechnischen Gründen als endständige Elektroden

109827/0743

BAD ORIGINAL

ebenfalls Janus-Elektroden eingesetzt. Hierbei hat es sich als vorteilhaft erwiesen, die an die endständige Elektrode 15 anschließende Endplatte 20 mit einer Aussparung zur Aufnahme des Elektrolyten zu versehen, um auf diese Weise einen Druckausgleich und damit eine erhöhte Betriebssicherheit zu erzielen. Gemäß einer anderen Ausführungsform der Erfindung kann die Betriebssicherheit der endständigen Janus-Elektrode jedoch auch durch Versiegelung der auf der Endplatte 20 aufliegenden Elektrodenseite erreicht werden. Die Kontaktfahnen der positiven und negativen Elektroden befinden sich vorteilhafterweise auf diametral entgegenliegenden Seiten der Batterie.

Obwohl ein Vergießen der Batterie nicht erforderlich ist, kann es bei bestimmten Anwendungsgebieten von Vorteil sein, eine zusätzliche Ummantelung mittels Gießharzen, insbesondere Epoxidharzen, durchzuführen.

Abschließend wird noch darauf hingewiesen, daß die in der Beschreibung und den Figuren wiedergegebenen Ausführungsformen der Erfindung selbstverständlich nur beispielhaft sind und daß auch andere Ausführungsformen möglich sind.

18 Patentansprüche

2 Figuren

109827/0743

11-6610 1042

BAD ORIGINAL

Patentansprüche

- (1) Brennstoffzellenbatterie mit doppelseitig arbeitenden Elektroden, dadurch gekennzeichnet, daß die Elektroden mit einem Profilrahmen, der mit Öffnungen für die Zu- und Abführung der Betriebsmittel versehen ist, gas- und flüssigkeitsdicht verklebt sind, und daß die Profilrahmen der in alternierender Reihenfolge aufgestapelten negativen und positiven Elektroden untereinander ebenfalls gas- und flüssigkeitsdicht verklebt sind.
2. Brennstoffzellenbatterie nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der Profilrahmen aus einem thermoplastischen oder duroplastischen Kunststoff besteht.
3. Brennstoffzellenbatterie nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß der Rahmen aus Polysulfon besteht.
4. Brennstoffzellenbatterie nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß der Profilrahmen aus einem Epoxidharzformstoff besteht.
5. Brennstoffzellenbatterie nach den Ansprüchen 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß das Klebemittel aus dem gleichen Material wie der Profilrahmen besteht.
6. Brennstoffzellenbatterie nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß das Klebemittel aus Polysulfon besteht.
7. Brennstoffzellenbatterie nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß das Klebemittel aus einem Epoxidharz besteht.
8. Brennstoffzellenbatterie nach den Ansprüchen 1 und 2, dadurch gekennzeichnet, daß das Klebemittel ein Klebefilm, eine beidseitig klebende Folie oder ein Prepreg ist.
9. Brennstoffzellenbatterie nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß der Prepreg ein mit Kunststoffen, insbesondere Epoxidharzen vorimprägniertes Glasgewebe, Asbestpapier oder

109827/0743

vorimprägnierter Kohlefilz ist.

10. Verfahren zur Herstellung der Brennstoffzellenbatterie nach den Ansprüchen 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß die doppel-seitig arbeitenden Gasdiffusionselektroden in Profilrahmen ein-gelegt und mit diesen verklebt werden, wobei die Verklebung der Profilrahmen untereinander im gleichen oder in einem späteren Arbeitsgang erfolgt.

11. Verfahren nach Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, daß die aus Kunststoff bestehenden Profilrahmen zunächst mit einem geeigneten Lösungsmittel angelöst und anschließend mit den Elektroden und/oder benachbarten Rahmen verklebt werden.

12. Verfahren nach Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, daß die Profilrahmen mit den Elektroden und/oder benachbarten Rahmen mittels Polysulfonlösungen verklebt werden.

13. Verfahren nach Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, daß die Profilrahmen mit den Elektroden und/oder benachbarten Rahmen mittels Epoxidharzlösungen verklebt werden.

14. Verfahren nach den Ansprüchen 10 bis 13, dadurch gekennzeichnet, daß das Klebemittel auf die Profilrahmen und/oder Elektrodenränder im Siebdruckverfahren aufgebracht wird.

15. Verfahren nach Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, daß die Profilrahmen mit den Elektroden und/oder benachbarten Rahmen mittels Klebefilmen verklebt werden.

16. Verfahren nach Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, daß die Profilrahmen mit den Elektroden und/oder benachbarten Rahmen mittels beidseitig klebenden Folien verklebt werden.

17. Verfahren nach Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, daß die Profilrahmen mit den Elektroden und/oder benachbarten Rahmen mittels Prepregs verklebt werden.

1964811

18. Verfahren nach Anspruch 17, dadurch gekennzeichnet, daß die Elektrodenränder vor dem Auflegen der Prepregs mit einer Versiegelungsmasse, insbesondere einem Epoxidharz, versehen werden.

109827/0743

ORIGINAL INSPECTED

10
Leerseite

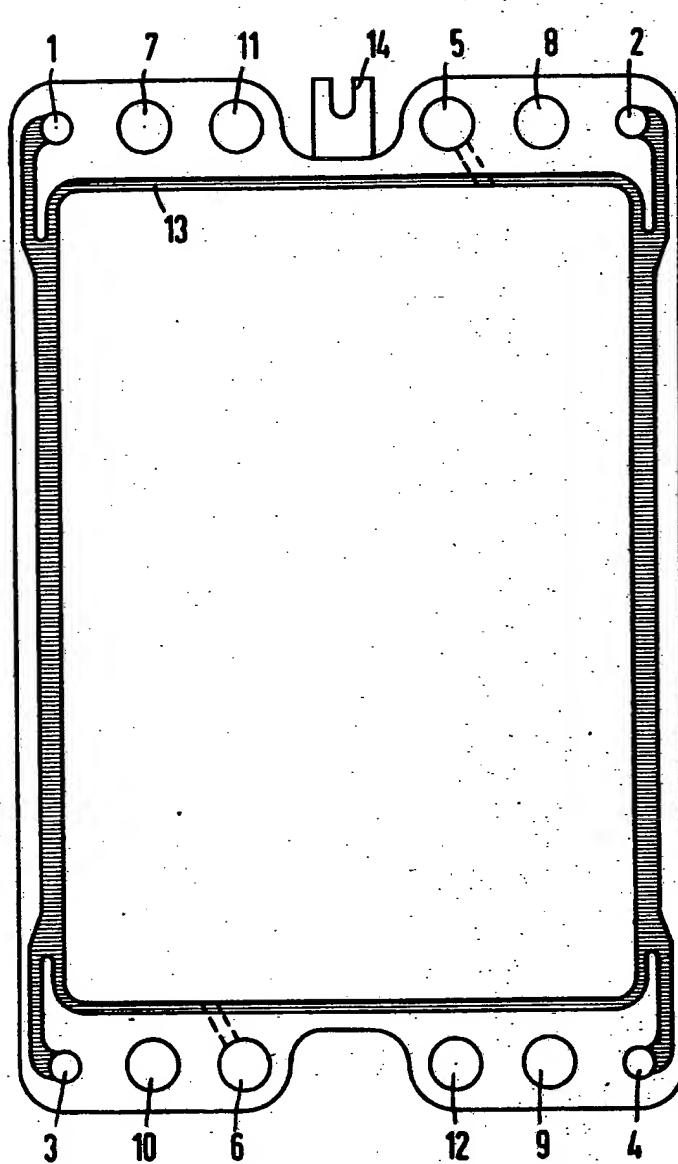


Fig. 1

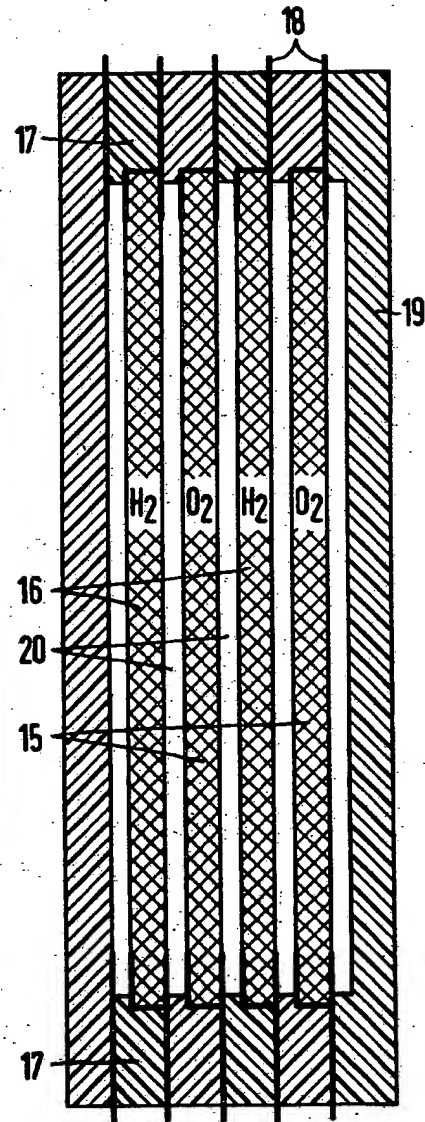


Fig. 2